

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-025104

(43)Date of publication of application : 01.02.1994

(51)Int.Cl.

C07C 69/96
B01J 23/44
C07C 68/00
C07C 68/08
// C07B 61/00

(21)Application number : 03-269950

(71)Applicant : UBE IND LTD

(22)Date of filing : 19.07.1991

(72)Inventor : NISHIHARA KEIGO
TANAKA HIDEJI
YOSHIDA SHINICHI

(54) CONTINUOUS PRODUCTION OF DIMETHYL CARBONATE

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a new process capable of industrially and advantageously performing production of dimethyl carbonate by a vapor-phase reaction by using carbon monoxide and methyl nitrite as raw materials in the presence of a platinum group metal-based solid catalyst.

CONSTITUTION: A new process for continuously producing dimethyl carbonate consists of (A) a reaction process wherein carbon monoxide and a methyl nitrite-containing gas are introduced to a reactor packed with a solid catalyst carrying a platinum group metal (compound) or the platinum group metal (compound) and a cocatalyst and catalytically reacted in a vapor phase to give a reactional product comprising dimethyl carbonate, (B) the reaction product is fed to an absorption column, dimethyl oxalate is used as an absorption solvent and the reactional product is separated into a nitrogen monoxide-containing concondensed gas and an absorption solution having absorbed dimethyl carbonate, (C) the noncondensed gas is sent to a recovering column, nitrogen monoxide is recovered as methyl nitrite and methyl nitrite is circulatively fed to the reactor, (D) dimethyl carbonate is separated from methanol by extractive distillation while adding further dimethyl oxalate to the absorption solution and (E) dimethyl carbonate is separated from a mixture of the separated dimethyl carbonate and dimethyl oxalate by distillation.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

18.07.1996

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

2795360

[Date of registration]

26.06.1998

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-25104

(43)公開日 平成6年(1994)2月1日

(51)Int.Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 7 C 69/96	Z	9279-4H		
B 0 1 J 23/44	X	8017-4G		
C 0 7 C 68/00	A	9279-4H		
68/08		9279-4H		
// C 0 7 B 61/00	3 0 0			

審査請求 未請求 請求項の数1(全 6 頁)

(21)出願番号 特願平3-269950

(22)出願日 平成3年(1991)7月19日

(71)出願人 000000206

宇部興産株式会社

山口県宇部市西本町1丁目12番32号

(72)発明者 西平 圭吾

山口県宇部市大字小串1978番地の10 宇部
興産株式会社宇部統合事業所内

(72)発明者 田中 秀二

山口県宇部市大字小串1978番地の10 宇部
興産株式会社宇部統合事業所内

(72)発明者 吉田 信一

山口県宇部市大字小串1978番地の10 宇部
興産株式会社宇部統合事業所内

(54)【発明の名称】 炭酸ジメチルの連続的製法

(57)【要約】

【構成】 本発明は、炭酸ジメチルの新規な工業的製造法に関する。一酸化炭素と亜硝酸メチルとを原料として、白金族金属および/またはその化合物を担持した或いは白金族金属および/またはその化合物並びに助触媒を担持した固体触媒の存在下、気相反応による炭酸ジメチルの製造を、工業的に有利に実施することのできる新規なプロセスを提供するものである。本プロセスは、反応工程、吸収工程、再生工程、抽出工程、蒸留工程の5工程からなるプロセスを特徴とする炭酸ジメチルの連続製造法である。

【効果】 本発明の方法では、極めて工業的に有利に炭酸ジメチルが得られることを見出し、その連続的製法の発明を供するものである。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 1. 白金族金属及び／またはその化合物を担持した或いは白金族金属及び／またはその化合物並びに助触媒を担持した固体触媒を充填した反応器に、一酸化炭素と亜硝酸メチルを含有するガスを導入し、気相で接触反応させて、炭酸ジメチルを含む反応生成物を得る第一工程、

2. 第一工程における反応生成物を吸収塔に導き、吸収溶媒としてシュウ酸ジメチルを添加して、第一工程の接触反応で生成した一酸化窒素を含有する非凝縮ガスと生成した炭酸ジメチルを吸収した吸収液とに分離する第二工程、

3. 第二工程における非凝縮ガスを再生塔に導き、供給する分子状酸素含有ガスおよびメタノールと接触させ、塔出口ガス中の一酸化窒素が2～7容量%になるように非吸収ガス中の一酸化窒素を亜硝酸メチルに再生し、第一工程の反応器に循環供給する第三工程、

4. 第二工程で得られた炭酸ジメチルとメタノールおよびシュウ酸ジメチルの混合液に更にシュウ酸ジメチルを添加しながら炭酸ジメチルをメタノールから抽出蒸留分離する第四工程、

5. 第四工程におけるメタノールから分離された炭酸ジメチルとシュウ酸ジメチルの混合物から炭酸ジメチルを蒸留分離して炭酸ジメチルを製品として得る。また、シュウ酸ジメチルは、第四工程に循環供給する第五工程、の各工程から成ることを特徴とする炭酸ジメチルの連続的製法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、炭酸ジメチルの新規な製法に関し、一酸化炭素と亜硝酸メチルとを原料として、白金族金属系固体触媒の存在下、気相反応による炭酸ジメチルの製造を、工業的に有利に実施することのできる新規なプロセスを提供するものである。炭酸ジメチルは、芳香族ポリカーボネートや医薬品等の合成原料としてまた溶剤として有用な化合物である。

【0002】

【従来の技術】 従来、一酸化炭素と亜硝酸メチルを白金族金属系固体触媒に気相で接触させ、炭酸ジメチルを製造する方法については、すでに本発明者らが特開平3-141243号や特願平2-257042号などにより提案している。この反応自体は、炭酸ジメチルの製法として極めて優れた反応である。しかし、この反応を工業的に適用し、工業的規模で炭酸ジメチルの製造を行うためには、その反応および分離精製を連続的かつ効率的に行うことのできるプロセスを必要とする。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明者らは、一酸化炭素と亜硝酸メチルを、白金族金属系固体触媒に気相接触させ、炭酸ジメチルを製造する方法において、工業的

に新規な連続プロセスを確立することを目的とし、鋭意検討を行った。

【0004】 一酸化炭素と亜硝酸メチルから炭酸ジメチルを製造する方法については、本発明者らが提案したもの以外に特開昭60-181051号に開示されているものがあるがいずれも工業的な連続プロセスとしては、十分には開示されていなかった。本発明は、炭酸ジメチルの連続製造法として、新規で工業的な連続プロセスを供するものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】

1. 白金族金属及び／またはその化合物を担持した或いは白金族金属及び／またはその化合物並びに助触媒を担持した固体触媒を充填した反応器に、一酸化炭素と亜硝酸メチルを含有するガスを導入し、気相で接触反応させて、炭酸ジメチルを含む反応生成物を得る第一工程、

2. 第一工程における反応生成物を吸収塔に導き、吸収溶媒としてシュウ酸ジメチルを添加して、第一工程の接触反応で生成した一酸化炭素を含有する非凝縮ガスと生成した炭酸ジメチルを吸収した吸収液とに分離する第二工程、

3. 第二工程における非凝縮ガスを再生塔に導き、供給する分子状酸素含有ガスおよびメタノールと接触させ、塔出口ガス中の一酸化窒素が2～7容量%になるように非吸収ガス中の一酸化窒素を亜硝酸メチルに再生し、第一工程の反応器に循環供給する第三工程、

【0006】 4. 第二工程で得られた炭酸ジメチルとメタノールおよびシュウ酸ジメチルの混合液に更にシュウ酸ジメチルを添加しながら炭酸ジメチルをメタノールから抽出蒸留分離する第四工程、

5. 第四工程におけるメタノールから分離された炭酸ジメチルとシュウ酸ジメチルの混合物から炭酸ジメチルを蒸留分離して炭酸ジメチルを製品として得る。また、シュウ酸ジメチルは、第四工程に循環供給する第五工程、の各工程からなるプロセスを採用すれば、極めて工業的に有利な炭酸ジメチルが得られることを見出し、その連続的製法の開発に到った。

【0007】 次に、本発明の各工程について、以下に詳細に説明する。

第一工程

白金族金属及び／またはその化合物を担持した或いは白金族金属及び／またはその化合物並びに助触媒を担持した固体触媒を充填した反応器に、一酸化炭素および亜硝酸メチルを含有する原料ガスを導入し、気相で接触反応させる。反応器としては、単管式あるいは多管式触媒充填塔が有効で、白金族金属系固体触媒と原料ガスとの接触時間は、好適には10秒以下、好ましくは0.2～5秒となるように設定する。白金族金属系固体触媒としては、特願平3-141243号や特願平1-201146号に記載されている白金族金属の化合物を担体に担持

した触媒あるいは白金族金属の陽イオンとして担体に担持した触媒、さらに銅や鉄の塩類を助触媒として添加したものが有効である。

【0008】単体は、活性炭、アルミナ、シリカ、珪藻土、ゼオライト、粘土鉱物などが使用される。また原料ガスである一酸化炭素および亜硝酸メチル含有ガスは通常窒素、炭酸ガスなどの反応に不活性なガスで希釈される。

【0009】反応温度については、反応は低温でも充分速やかに進行し、また反応温度が低いほど副反応が少ないため、所望の空時収量が維持される限り比較的低温、すなわち好適には50～200℃、好ましくは80～150℃である。また反応圧力については、好適には常圧ないし10kg/cm²（ゲージ圧）、好ましくは常圧ないし5kg/cm²（ゲージ圧）の圧力で実施され、場合によっては常圧よりやや低い圧力であってもよい。

【0010】原料ガス中の亜硝酸メチルの濃度は、広範囲に変えることができるが、満足すべき反応速度を得るためには、その濃度が好適には1容量%以上となるように存在させることが必要であり、逆に、亜硝酸メチルは、爆発性化合物であるので高濃度にすることは安全性の面から好ましくなく、従って好ましくは3～25容量%である。原料ガス中の一酸化炭素の濃度は、広範囲に変わってよく、好適には10～90容量%の範囲で選ぶことができるが、連続プロセスでは、不活性ガスの濃度を一定に保つために循環ガスの一部をバージするため、高濃度にすると系外にロスが増えるので、5～30容量%で行うのが経済的に好ましい。

【0011】第二工程

第一工程における反応生成物をガス分離を行う吸収塔下部に導き、同時にこの吸収塔上部よりシュウ酸ジメチルをフィードし、反応ガス中の炭酸ジメチルをシュウ酸ジメチルによって吸収分離する。炭酸ジメチルが分離されたガス中には少量の炭酸ジメチルおよびシュウ酸ジメチルが同伴し、これは第三工程で一酸化窒素の再生時、加水分解され全くのロスとなるので、同伴する炭酸ジメチルおよびシュウ酸ジメチルを回収するため吸収塔頂部より少量のメタノールをフィードすることが好ましい。

【0012】シュウ酸ジメチルの流量量は、吸収塔に入ってくる炭酸ジメチルの量によるが、炭酸ジメチルに対し、好適には3～10重量倍でよくさらに好ましくは4～6重量倍を必要とする。また、塔頂からフィードするメタノール量としては、メタノール自体は、第四工程で分離しなければならないものであるから少ないほうが好ましいがあまり少ないと炭酸ジメチル、シュウ酸ジメチルのロスが多くなるので、反応ガス中の炭酸ジメチルに対して好適には5～30重量%がよく、さらに好ましくは10～20重量%が必要である。

【0013】吸収塔の操作温度としては、炭酸ジメチルの吸収を効率よく行うためには、低い方がよいが、あま

り低くするとシュウ酸ジメチルの固化が起こり、またエネルギー的にも不利であるので、好適には0℃～80℃、好ましくは10℃～50℃で行うのがよい。シュウ酸ジメチルによって吸収分離した炭酸ジメチルとシュウ酸ジメチルの混合液は、メタノールおよび反応で生成した微量のギ酸メチルなどの低沸点化合物を除去するために、第四工程へ送られる。一方、非凝縮ガスは第一工程の接触反応で生成した一酸化窒素のほかに、未反応の一酸化炭素、亜硝酸メチルなどが含まれており、第三工程へ送られる。

【0014】第三工程

第二工程で分離された非吸収ガスを再生塔に導き、分子状酸素含有ガスおよびメタノールと接触させて、ガス中の一酸化窒素を亜硝酸メチルに再生する。この工程における再生塔としては、充填塔、気泡塔、スプレー塔、段塔などの通常の気液接触装置が用いられる。

【0015】メタノールと接触させる非吸収ガスおよび分子状酸素含有ガスは、個別にまたは混合状態で再生塔に導入することができる。この再生塔では、一酸化窒素の一部を分子状酸素含有ガスにより二酸化窒素に酸化するとともに、これらをメタノールに吸収反応させて亜硝酸メチルに再生するものである。分子状酸素含有ガスとしては、純酸素または不活性ガスで希釈された酸素を使用し、再生ガス中の一酸化窒素の濃度が2～7容量%になるようにフィードされる。これは、該ガスを第一工程の反応器に循環使用する場合、一酸化窒素の濃度が、8容量%以上であると反応の阻害効果が顕著になり、また2容量%以下になると、再生ガス中にかなりの量の酸素および二酸化窒素が含有されることになり、これらが触媒の活性を低下させる要因になるからである。

【0016】このために、再生塔に導入されるガス中の一酸化窒素1モルに対して、分子状酸素含有ガスを酸素基準で0.08～0.2モル供給し、これらのガスを60℃以下の温度でメタノールと接触させるのがよく、その接触時間は0.5～2秒が好ましい。またメタノールの使用量は、生成する二酸化窒素およびこれとほぼ等モルの一酸化窒素とを、完全に吸収反応させる必要量以上用いられ、通常再生塔に導入されるガス中の一酸化窒素1容量部に対し、メタノールを2～5容量部用いるのが好ましい。

【0017】なお、この発明は連続プロセスであるため、亜硝酸メチルが、吸収塔の吸収液や再生塔の缶液に少量溶解して系外に同伴したり、循環ガスの一部をバージしたりすることにより、酸化窒素分が損失するので、その補給は第一工程の反応器に亜硝酸メチルを供給するか、あるいは第三工程の再生塔に一酸化窒素、二酸化窒素、三酸化二窒素、四酸化二窒素などの窒素酸化物または硝酸を導入することによっても行える。

【0018】また、第二工程における非吸収ガス中の一酸化窒素の含有量が多く、第三工程で一酸化窒素を亜硝

酸エステルに化合する際、必要量以上の亜硝酸メチルが得られる場合には、非吸収ガスを全量再生塔に導くことなく、その一部は第一工程における反応器に直接循環供給してもよい。再生塔から導出される液は、再生反応で副生した水を含むメタノール溶液であるので、これは蒸留などの操作によって、メタノール中の水分が好適には2容量%以下、好ましくは0.2容量%以下に精製した後、第三公定や第二工程で再使用するのが工業的に有利である。

【0019】第四工程

第二工程から導出される炭酸ジメチル、メタノールおよびシュウ酸ジメチルの混合液は、メタノールを除去するための抽出蒸留塔下部へフィードされる。抽出蒸留塔へは同時に、メタノールと炭酸ジメチルの共沸を防止するためにあらたにシュウ酸ジメチルを塔下部にフィードする。シュウ酸ジメチルのフィード量は、塔へフィードされる炭酸ジメチルとメタノールの全モル数に対して好適には0.1~2倍モルが良く、好ましくは0.5~1.5倍モルが必要である。シュウ酸ジメチルの量は、炭酸ジメチルの留出側への実質的な損失を防止するための重要な吸収剤の役割をするものであり、プロセスを循環使用するため分離するための蒸留塔段数の増加および分離の際のエネルギー使用量により定まるのである。すなわち、シュウ酸ジメチルの流量があまり少ないと、炭酸ジメチルの留出側への損失が大きくなり収率を悪化させたり、また吸収分離する吸収塔も高い段数が必要となる。逆に多い方は、ある量以上になれば炭酸ジメチルの留出側への損失は、実質的になくなるのでそれ以上流しても効果はなく、エネルギー的に無駄となるだけだからである。

【0020】操作圧力は、特に制限はないが、減圧から加圧までの広い範囲で行うことが可能であるが、常圧~2 kg/cm² Gの範囲で操作するのが好ましい。抽出蒸留塔から留出するメタノールは、第二工程や第三工程で再使用するのが工業プロセスとして好ましいが、第一工程の反応で副生物として少量生成するギ酸メチル、メチラールがこの留出メタノール中に含まれているので、これらを蒸留分離した後、メタノールを再使用するのが望ましい。なお、分離された蒸留残渣のギ酸メチル、メチラールは焼却等により廃棄されるが、アルカリ分解等によりこれらからさらにメタノールとして回収することも可能である。抽出蒸留塔の缶液は、ほぼ炭酸ジメチルとシュウ酸ジメチルの二成分の溶液状態で第五工程へ供給される。

【0021】第五工程

第四工程でメタノールその他の低沸点生成物を分離した液は、第五工程では製品の炭酸ジメチルを得るための蒸留塔で炭酸ジメチルが蒸留分離され、高品質の炭酸ジメチルが連続して取り出される。操作圧力に特に制限はなく、加圧から減圧の広い範囲で行うことが可能であ

る。一方、この蒸留塔の缶液は、かなり純度の高いシュウ酸ジメチルが得られ、第二工程および第三工程にそのまま供給され、第一工程の反応で副生物として生成する量は、副生品として抜き出される。シュウ酸ジメチル自体も多様な用途を持つ化合物であるため、缶液の状態でも純度の高いものであるが必要ならさらに蒸留精製される。なお、第四工程、第五工程における蒸留塔は、充填塔、棚段塔など通常の装置が用いられる。

【0021】次にこの発明のプロセスを、この発明の一実施態様を示すフローシート図面に従って具体的に説明する。白金族金属系固体触媒を反応管に充填した多管式反応器1の上部に、一酸化炭素、亜硝酸メチル、一酸化窒素を含有するガスを、導管20に設置するガス循環機（図示せず）で加圧して導管22を通して導入する。反応器1において気相で接触反応を行い、触媒層を通過した反応生成ガスは下部から取り出され、導管11を通して吸収塔2に導入される。

【0022】吸収塔2では、導管13、14から導入されるメタノール、シュウ酸ジメチルと接触させながら反応生成ガス中の炭酸ジメチルを、シュウ酸ジメチルに吸収分離し、炭酸ジメチルとシュウ酸ジメチルおよびメタノールからなる液は下部から導管15を通して抽出蒸留塔4に導かれる。一方、未反応の一酸化炭素と亜硝酸メチルおよび副生した一酸化窒素などを含む非吸収ガスは、上部から導管12を通して再生塔3の下部に導入される。

【0023】再生塔3において非吸収ガスは、下部に導管16を通して導入される分子状態酸素含有ガスを混合し、上部に導管19を通して導入されるメタノールと向流接触により反応させて、亜硝酸メチルを再生させる。この再生塔3では、一酸化窒素の二酸化窒素への酸化反応に引き続きメタノールへの吸収反応が起こり、亜硝酸メチルが生成するのである。なお亜硝酸メチルを生成するに十分な窒素源が不足する場合には導管17を通して窒素酸化物を混入してもよい。

【0024】再生塔3で生成した亜硝酸メチル含有ガスは、導管20、22を通して、導管21より新しく供給される一酸化炭素とともに、反応器1に循環供給される。一方、再生塔3で副生した水は、メタノール水溶液の形で底部から導管18を通して取り出される。このメタノール水溶液は、蒸留などの操作によって液中の水分を除去した後、前記導管13、19を通して吸収塔2または再生塔3に供給されるメタノールとして循環再利用される。

【0025】抽出蒸留塔4では、導管25より導入されるシュウ酸ジメチルとの向流接触によって炭酸ジメチルのみの抽出を行い、メタノールと分離される。分離されたメタノールは上部より導管24によってメタノール精製を行う蒸留塔6に導かれ、精製された後、前記導管13、19を通して吸収塔2、再生塔3に供給されるメタ

ノールとして循環再利用を行う。また、メタノールを分離した炭酸ジメチルとシュウ酸ジメチルの混合液は導管23を通して、蒸留塔5に導かれる。

【0026】蒸留塔5では、上部より炭酸ジメチルを製品目的物として導管27を通して取得する。缶液は純度の高いシュウ酸ジメチルであり、一部は副生物として導管28を通して取得されるが、残りは導管26、14、25を通して、吸収塔2および蒸留塔4に供給される。

【0027】

【実施例】次に実施例によって具体的に説明する。

実施例 1

内径27.1mm、高さ500mmのチューブ6本よりなるステンレス製多管反応器のチューブ内に、特願平2-257042号で示されるような活性炭（武田（株）白鷺4mmφ×6mm）にパラジウムを担持した触媒780g（1.731）を充填した。この触媒層に上部からダイヤフラム式ガス循環ポンプで、2.5kg/cm²（ゲージ圧）に圧縮した原料ガス（組成：一酸化炭素15.0容量%、亜硝酸メチル15.0容量%、一酸化窒素3.5容量%、メタノール1.8容量%、炭酸ガス2.2容量%および窒素62.5容量%）を予め熱交換器で約90℃に予熱した後6.9Nm³/hrの速度で供給し、反応器のシェル側に熱水を通すことにより触媒層の中央部温度を約120℃に保持した。この反応の炭酸ジメチル生成の反応速度は、STYが430kg/m³hrであった。

【0028】触媒層を通過したガスを、内径100mm、高さ1300mmのランヒリング充填式気液接触吸収器の塔底に導き、該塔頂からメタノール0.21/hrをまた塔頂から200mm下のところからシュウ酸ジメチル2.65kg/hrの速度で導入し、塔頂温度5℃、塔底温度20℃で向流接触した。塔底から吸収液

（組成：シュウ酸ジメチル76.7重量%、炭酸ジメチル19.6重量%、メタノール3.7重量%、ギ酸メチル0.1重量%）3.8kg/hrを得た。一方塔頂から非吸収ガス（組成：一酸化炭素12.8容量%、亜硝酸メチル10.3容量%、一酸化窒素8.7容量%、メタノール1.9容量%、炭酸ガス2.2容量%および窒素64.0容量%）6.8Nm³/hrを得た。

【0029】この非吸収ガスに、酸素87.2Nl/hrおよび一酸化窒素14.0容量%を含む窒素ガス7.5Nl/hrを混入した後、内径158mm、高さ14

00mmの気液接触式再生塔の塔底に導き、該塔頂からメタノール5.01/hrの速度で導入し、塔頂温度30℃、塔底温度40℃で向流接触させ、ガス中の一酸化窒素を亜硝酸メチルに再生した。再生塔における再生ガス（組成：一酸化炭素12.8容量%、亜硝酸メチル15.4容量%、一酸化窒素3.7容量%、メタノール1.9容量%、炭酸ガス2.3容量%および窒素64.1容量%）6.6Nm³/hrは、前記ガス循環ポンプに供給圧縮した。次いで吐出ガスに一酸化炭素0.2Nm³/hrを補給混合して反応器へ導いた。一方この再生塔から導出された2.2重量%含水メタノール4.01/hrは、蒸留によって水を除去後、該塔におけるメタノール源として再使用した。

【0030】前記吸収塔から導出された吸収液3.5kg/hrを、内径50mm、高さ2500mmの蒸留塔の中段に導き、塔頂から300mm下にシュウ酸ジメチル液を1.4kg/hrの速度で導入し、塔頂温度64℃、塔底温度146℃で蒸留した。塔底から、炭酸ジメチル14.3重量%、シュウ酸ジメチル87.5重量%の混合液4.78kg/hを得た。一方、塔頂から、メタノール94.5重量%、ギ酸メチル5.2重量%、炭酸ジメチル0.3重量%からなる留出液0.13kg/hrを得た。このメタノール液は蒸留塔で精製されて前記再生塔および吸収塔に循環再使用した。

【0031】この蒸留塔から導出された炭酸ジメチルとシュウ酸ジメチルの混合液を、内径65mm、高さ1600mmの充填塔に導き、塔頂温度90℃、塔底温度163℃で蒸留した。塔頂からは純度99.4%の炭酸ジメチル0.68kg/hrを得た。また、塔底からはほぼ100%純度のシュウ酸ジメチル4.69kg/hrを抜き出し、この内4.05kg/hrは吸収塔と抽出蒸留塔に循環供給した。この結果、反応で生成した炭酸ジメチルから、98%の生成収率で高純度の炭酸ジメチルを連続的に得ることができた。

【0032】

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、この発明の一実施例を示すフローシートである。

符号の説明

1は反応器、2は吸収塔、3は再生塔、4は抽出蒸留塔、5、6は蒸留塔を示し、11～29は導管を示す。

【図1】

